

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **11185771 A**

(43) Date of publication of application: **09.07.99**

(51) Int. Cl

**H01M 4/96**

**H01M 4/88**

(21) Application number: **09356992**

(71) Applicant: **OSAKA GAS CO LTD**

(22) Date of filing: **25.12.97**

(72) Inventor: **TAJIRI HIROYUKI  
FUJITA JUNICHI**

(54) **MANUFACTURE OF PAPER AND POROUS  
CARBON PLATE FOR FUEL CELL**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a paper sheet which can reduce contact resistance with a separator, and has homogeneous and excellent gas permeability, electrical conductivity and mechanical strength, in manufacturing a gaseous diffusion electrode plate such as a phosphoric acid holder and an electrode catalyst carrier in a phosphoric acid fuel cell, and an electrode catalyst carrier in a solid macromolecular fuel cell.

SOLUTION: A paper sheet consisting of pitch carbon fiber 10-95 wt.% having a fiber diameter 1  $\mu\text{m}$  and paper weight 50 g/m<sup>2</sup>, and polyester fiber 90-5wt.% having a carbonization yield less than 30% is heated at 160°C and pressured. And a formed sheet formed by homogeneously attaching a melted phenolic plastic 55 wt.% having a carbonization yield 40-75 wt.% to the paper sheet is obtained. The formed sheet is vertically pinched by graphite plates, baked, and graphitized, thus a porous carbon plate for a fuel cell is manufactured.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-185771

(43) 公開日 平成11年(1999) 7月9日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 1 M 4/96

H 0 1 M 4/96

M

4/88

4/88

C

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平9-356992

(71) 出願人 000000284

大阪瓦斯株式会社

大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号

(22) 出願日 平成9年(1997)12月25日

(72) 発明者 田尻博幸

大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪

瓦斯株式会社内

(72) 発明者 藤田 順一

大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪

瓦斯株式会社内

(74) 代理人 弁理士 杉谷 勉

(54) 【発明の名称】 抄紙体および燃料電池用多孔質炭素板の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 リン酸型燃料電池におけるリン酸保持体や電極触媒担持体とか、固体高分子型燃料電池における電極触媒担持体といったガス拡散電極板として製作する上で、セパレーターなどとの接触抵抗を低減でき、かつ、ガス透過性、電気伝導性、機械強度に優れた均質なものにできる抄紙体を提供する。

【解決手段】 繊維径が1  $\mu$ mでペーパー目付が50 g/m<sup>2</sup>のピッチ系炭素繊維10～95重量%と、炭化収率30重量%以下のポリエステル繊維90～5重量%とから成る抄紙体を160℃で加熱しながら加圧し、炭化収率が40～75重量%のフェノール樹脂55重量%を溶融させ、抄紙体にフェノール樹脂を均質に付着させた成形シートを得る。この成形シートを上下から黒鉛板で挟み、焼成、黒鉛化処理し、燃料電池用多孔質炭素板を製造する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭素繊維化可能な繊維径1～4  $\mu\text{m}$ の繊維、または、繊維径0.5～3  $\mu\text{m}$ の炭素繊維10～95重量%と、炭化収率30重量%以下の有機繊維90～5重量%とから構成したことを特徴とする抄紙体。

【請求項2】 炭素繊維化可能な繊維径1～4  $\mu\text{m}$ の繊維、または、繊維径0.5～3  $\mu\text{m}$ の炭素繊維20～50重量%と、炭化収率40～75重量%の結合剤15～50重量%とを含むことを特徴とする抄紙体。

【請求項3】 請求項1に記載の抄紙体に炭化収率40～75重量%の結合剤15～50重量%を均質に付着させた炭素質予備成形体を圧縮成形した後、その圧縮成形品を炭化または黒鉛化処理することを特徴とする燃料電池用多孔質炭素板の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、リン酸型燃料電池におけるリン酸保持体や電極触媒担持体とか、固体高分子型燃料電池における電極触媒担持体といったガス拡散電極板などの材料である抄紙体、ならびに、ガス拡散電極板として製作する上で有用な燃料電池用多孔質炭素板の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】例えば、リン酸型燃料電池の場合、リン酸を電解液として、その電解液の両側に、厚み0.1～0.3mmのポーラスな多孔質炭素板を設け、その表面に電極触媒としての白金合金触媒を担持させている。その外側にガス流路である溝の付いた厚み1～3mmのリン酸保持体である多孔質炭素板およびセパレーターを設け、単位セルを構成している。

【0003】電極触媒を担持する多孔質炭素板は細孔分布がコントロールされ、ガス透過性が高いこと、更に、電気伝導性、熱伝導性、機械強度、耐リン酸性などが要求される。

【0004】また、電極触媒担持体である多孔質炭素板とリン酸保持体である多孔質炭素板との間の接触抵抗は低いことが要求される。更に、電極触媒担持体である多孔質炭素板と緻密質炭素板であるセパレーターとの間の接触抵抗も低いことが要求される。

【0005】従来、上述のような電極触媒担持体である多孔質炭素板を製造する場合、繊維径（繊維直径の意味であり、以下同じである）7  $\mu\text{m}$ の炭素繊維からなる炭素繊維抄紙体（ペーパー目付50  $\text{g}/\text{m}^2$ 程度）にフェノール樹脂などの結合剤を含浸して、熱プレスによりシート状に加熱成形し、炭化または黒鉛化処理する方法が採用されている。

【0006】また、リン酸保持体である多孔質炭素板を製造する場合、繊維径7～20  $\mu\text{m}$ の炭素繊維からなる炭素繊維抄紙体（ペーパー目付250  $\text{g}/\text{m}^2$ 程度）にフェノール樹脂などの結合剤を予め配合しておくか、後で含浸

して、熱プレスによりシート状に加熱、加圧成形し、炭化または黒鉛化処理する方法が採用されている。

【0007】また、高分子型燃料電池の場合、高分子電解膜の両側に、厚み0.1～0.3mmのポーラスな多孔質炭素板を設け、その表面に電極触媒としての白金合金触媒を担持させている。その外側にガス流路である溝の付いた厚み1～3mmの緻密質炭素板であるセパレーターを設け、単位セルを構成している。

【0008】電極触媒を担持する多孔質炭素板は細孔分布がコントロールされ、ガス透過性が高いこと、更に、電気伝導性、熱伝導性、機械強度、耐リン酸性などが要求される。

【0009】また、電極触媒を担持する多孔質炭素板と緻密質炭素板であるセパレーターとの間の接触抵抗は低いことが要求される。

【0010】従来、上述のような電極触媒担持体である多孔質炭素板を製造する場合、繊維径7  $\mu\text{m}$ の炭素繊維からなる炭素繊維抄紙体（ペーパー目付50  $\text{g}/\text{m}^2$ 程度）にフェノール樹脂などの結合剤を含浸して、熱プレスによりシート状に加熱成形し、炭化または黒鉛化処理する方法が採用されている。

## 【0011】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、リン酸型燃料電池の場合に、白金触媒担持体である多孔質炭素板、および、リン酸保持体である多孔質炭素板をそれぞれ製造するに際して、炭素繊維抄紙体を用いる方法では、炭素繊維の繊維径が7  $\mu\text{m}$ 以上と大きいと、電極触媒担持体である多孔質炭素板とリン酸保持体である多孔質炭素板との間、および、リン酸保持体である多孔質炭素板とセパレーターとの間それぞれでの接触抵抗が大きく、熱損失が大きい欠点があった。

【0012】更に、リン酸保持体である多孔質炭素板については、炭素繊維の繊維径が大きいと、気孔率を50%以上確保し、平均気孔径を28  $\mu\text{m}$ 以下にコントロールすることは困難であった。

【0013】また、前述した高分子型燃料電池の場合においても、抄紙体を用いる方法では、炭素繊維の繊維径が大きいと、電極触媒担持体である多孔質炭素板とセパレーターとの間での接触抵抗が大きく、熱損失が大きい欠点があった。

【0014】本発明は、このような事情に鑑みてなされたものであって、請求項1および請求項2に係る発明は、リン酸型燃料電池におけるリン酸保持体や電極触媒担持体とか、固体高分子型燃料電池における電極触媒担持体といったガス拡散電極板として製作する上で、セパレーターなどとの接触抵抗を低減でき、かつ、ガス透過性、電気伝導性、機械強度に優れた均質なものにできる抄紙体を提供することを目的とする。そして、請求項3に係る発明は、リン酸型燃料電池や固体高分子型燃料電池における電極触媒担持体といったガス拡散電極板とし

て製作する上で、セパレーターなどとの接触抵抗を低減でき、かつ、ガス透過性、電気伝導性、機械強度に優れた均質な多孔質炭素板の製造方法を提供することを目的とする。

【0015】

【課題を解決するための手段】請求項1に係る発明の抄紙体は、上述のような目的を達成するために、炭素繊維化可能な繊維径1〜4  $\mu\text{m}$ の繊維、または、繊維径0.5〜3  $\mu\text{m}$ の炭素繊維10〜95重量%と、炭化収率30重量%以下の有機繊維90〜5重量%とから構成したことを特徴として

【0016】炭素繊維化可能な繊維としては、炭素繊維の素材となり得る種々の繊維、例えば、ポリアクリロニトリル繊維、フェノール樹脂繊維、再生セルロース繊維（例えば、レーヨン、ポリノジック繊維など）セルロース系繊維などの有機繊維、ピッチ系繊維などが挙げられる。炭素繊維化可能な繊維は、耐炭化処理または不炭化処理されていてもよい。また、炭素繊維化可能な繊維は、1種でも2種以上を混合して使用するのでもよい。

【0017】炭素繊維化可能な繊維の繊維径は、炭素繊維化したときの繊維径が0.5〜3  $\mu\text{m}$ となるように、1〜4  $\mu\text{m}$ のものが選ばれる。1  $\mu\text{m}$ 未満では、ガス透過性が低下しやすく、一方、4  $\mu\text{m}$ を越えると、接触抵抗が大きくなるからである。

【0018】炭素繊維としては、前述の炭素繊維化可能な繊維を炭化または黒鉛化処理した繊維が挙げられる。炭素繊維は、1種でも2種以上を混合して使用するのでもよい。

【0019】炭素繊維の繊維径は、0.5〜3  $\mu\text{m}$ である。0.5  $\mu\text{m}$ 未満では、ガス透過性が低下しやすく、一方、3  $\mu\text{m}$ を越えると、接触抵抗が大きくなるからである。

【0020】炭素繊維化可能な繊維と炭素繊維とは単独で用いてもよいが、少なくとも炭素繊維を含むのが好ましい。また、炭素繊維化可能な繊維と炭素繊維とを併用すると、ガス透過性および強度が向上する。この炭素繊維化可能な繊維と炭素繊維との割合は、製造する多孔質炭素板の強度や電気伝導性に応じて適宜選択すればよい。

【0021】有機繊維としては、例えば、ポリエステル繊維、ポリアクリロニトリル繊維、フェノール樹脂繊維、再生セルロース繊維（例えば、レーヨン、ポリノジック繊維など）セルロース系繊維などが挙げられる。有機繊維は、1種でも2種以上を混合して使用するのでもよい。

【0022】有機繊維としては、炭化収率30重量%以下のものが使用される。炭化収率が30重量%を越えると、微細で均一な気孔の形成や気孔率の調整が困難になるからである。

【0023】上述の炭素繊維化可能な繊維または炭素繊維

維と、有機繊維との割合は、10〜95重量%/5〜90重量%である。炭素繊維化可能な繊維または炭素繊維の割合が10重量%未満になると接触抵抗が大きくなり、一方、95重量%を越えると、ガス透過性が低下しやすくなるからである。

【0024】また、請求項2に係る発明の抄紙体は、前述のような目的を達成するために、炭素繊維化可能な繊維径1〜4  $\mu\text{m}$ の繊維、または、繊維径0.5〜3  $\mu\text{m}$ の炭素繊維20〜50重量%と、炭化収率40〜75重量%の結合剤15〜50重量%とを含むことを特徴としている。

【0025】結合剤としては、例えば、フェノール樹脂、フラン樹脂、コブナ樹脂などの熱硬化性樹脂や、ポリアクリロニトリルなどの熱可塑性樹脂や、石炭または石油ピッチが使用できる。

【0026】結合剤としては、製造する多孔質炭素板の強度低下を防止するとともに気孔率を調整する上から、炭化収率40〜75重量%のものが使用される。好ましくは50〜75重量%程度である。

【0027】上述の炭素繊維化可能な繊維または炭素繊維の含有率としては、20〜50重量%であり、結合剤の含有率としては、15〜50重量%である。すなわち、炭素繊維化可能な繊維または炭素繊維に対する結合剤の割合は、30〜250重量部である。30重量部未満であると、製造する多孔質炭素板の強度が低下しやすくなり、一方、250重量部を越えると、ガス透過性が低下しやすくなるとともに接触抵抗が大きくなるからである。

【0028】上述のような請求項1および請求項2に係る発明それぞれの抄紙体としては、例えば、吸引成形法によって得ることができる。吸引成形法としては、各成分を含むスラリーを多数の吸引孔が形成された吸引成形型により吸引し、吸引成形型の表面に上述成分を堆積させる方法とか、あるいは、吸引成形型内にスラリーを注入して吸引する方法などが採用できる。吸引成形法により得られた吸引成形体の密度は、吸引圧により容易にコントロールできる。

【0029】スラリーの調製に際しては、炭素繊維化可能な繊維または炭素繊維を叩解し、例えば、0.05〜10mm、好ましくは0.5〜3mm程度の短繊維としてもよい。スラリーの固形分濃度は、吸引成形性を損なわない範囲で選択でき、例えば、0.1〜2重量%程度である。スラリーには、前記繊維や結合剤などを均一に分散させるため、分散剤、安定剤、粘度調整剤、沈降防止剤などを添加してもよく、また、増粘剤、紙力増強剤、凝集作用を有する界面活性剤、特に高分子凝集剤や歩留り向上剤などの種々の添加剤を添加してもよい。

【0030】吸引成形型から脱型した抄紙体は、通常、加熱乾燥される。湿潤状態の抄紙体の加熱乾燥は、常圧または減圧下50〜200℃程度の温度で行うことができる。

【0031】そして、請求項3に係る発明の燃料電池用

多孔質炭素板の製造方法は、前述のような目的を達成するために、請求項1に記載の抄紙体に炭化収率40～75重量%の結合剤15～50重量%を均質に付着させた炭素質予備成形体を圧縮成形した後、その圧縮成形品を炭化または黒鉛化処理することを特徴としている。

【0032】抄紙体を100℃以上の温度で加熱しながら加圧し、かつ、結合剤を溶融させ、抄紙体に結合剤を均質に付着した炭素質予備成形体を得る。

【0033】炭素質予備成形体の圧縮成形は、例えば、金型プレスやローラーによるプレス等の方法で行う。この圧縮成形は、成形体の均一性を高めるために加熱下で行うのが好ましい。加熱温度は適宜選択可能であるが、通常、100～250℃程度である。また、成形圧は、30～750kgf/cm<sup>2</sup>、好ましくは、50～750kgf/cm<sup>2</sup>程度である。

【0034】炭素質予備成形体を圧縮成形した後、その圧縮成形品を上下から黒鉛板で挟み、真空下または不活性ガス雰囲気下で800℃以上の温度で焼成し、その後、1000～3000℃で黒鉛化処理する。

【0035】

【作用】請求項1および請求項2に係る発明の抄紙体の構成によれば、炭化後の繊維径を0.5～3μmとし、この抄紙体によって製造した燃料電池用多孔質炭素板は、従来の繊維径7μmの抄紙体によって製造したものに比べ、同一炭素繊維含有率で、5.4～196倍の繊維本数にできる。これにより、燃料電池用多孔質炭素板内での炭素繊維どうしの接点数も5.4～196倍以上にできて内部の電気抵抗を低減する。また、例えば、セパレーターなどの他の部材との接触面積および接触機会を増大させ、接触抵抗を低減する。

【0036】また、請求項3に係る発明の燃料電池用多\*30

\*孔質炭素板の製造方法は、請求項1に係る発明の抄紙体を用い、結合剤を均質に付着させ、燃料電池用多孔質炭素板内において炭素繊維を均一に分散させる。

【0037】

【発明の実施の形態】次に、本発明の実施例について説明する。

実施例1

繊維径が1μmでペーパー目付が50g/m<sup>2</sup>のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）40重量%（抄紙体としては、88.9重量%）と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール×3mm）5重量%（抄紙体としては、11.1重量%）とを含む抄紙体（嵩密度0.05g/cm<sup>3</sup>）を160℃で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）55重量%を溶融させ、抄紙体にフェノール樹脂を均質に付着させた炭素質予備成形体としての成形シート（嵩密度0.7g/cm<sup>3</sup>）を得た。

【0038】上記成形シートを上下から黒鉛板で挟み、真空下または不活性ガス雰囲気下で900℃で焼成し、その後、2000℃で黒鉛化処理し、燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性（厚みmm、嵩密度g/cm<sup>3</sup>、平均気孔径μm、ガス透過率ml・mm/cm<sup>2</sup>・hr・mmAq、厚み方向の熱伝導率kcal/m・hr・℃、曲げ強度kg/cm<sup>2</sup>、多孔質炭素板とセパレーター間の接触抵抗Ωcm；以下同じである）を測定したところ、表-1（表中のNo1）に示す結果を得た。

【0039】

【表1】

表 - 1

実施例 No	1	2	3	4	5
炭素繊維：ピッチ系1μm	40		10		50
炭素繊維：ピッチ系3μm		40		10	
ポリエステル繊維	5	5	50	50	3
フェノール樹脂	55	55	40	40	47
多孔質炭素板の厚み (mm)	0.2	0.2	0.25	0.24	3
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	0.52	0.53	0.45	0.47	0.65
平均気孔径 (μm)	15	22	25	27	15
ガス透過率 (ml, mm/cm <sup>2</sup> ・hr, mmAq)	2500	2800	3700	3400	1400
厚み方向の熱伝導率 (kcal/m・hr・℃)	5.2	5.5	4	4.3	7.2
曲げ強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	120	150	100	120	250
多孔質炭素板/セパレーター間 接触抵抗 (Ωcm)	0.05	0.04	0.06	0.05	0.03

【0040】実施例2

実施例1における繊維径が1μmでペーパー目付が50g/m<sup>2</sup>のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）に代えて、繊維径が3μmでペーパー目付が50g/m<sup>2</sup>のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）を用いた以外は、実

施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-1（表中のNo2）に示す結果を得た。

【0041】実施例3

繊維径が1μmでペーパー目付が50g/m<sup>2</sup>のピッチ系炭

素繊維（大阪ガス株式会社製）10重量%（抄紙体としては、16.7重量%）と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール×3mm）50重量%（抄紙体としては、83.3重量%）とを含む抄紙体（嵩密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）40重量%を溶融させて成形シート（嵩密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-1（表中のNo 3）に示す結果を得た。

#### 【0042】実施例4

実施例3における繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）に代えて、繊維径が $3\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）を用いた以外は、実施例3と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-1（表中のNo4）に示す結果を得た。

#### 【0043】実施例5

繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭\*

\*素繊維（大阪ガス株式会社製）50重量%（抄紙体としては、94.3重量%）と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール×3mm）3重量%（抄紙体としては、5.7重量%）とを含む抄紙体（嵩密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）47重量%を溶融させて成形シート（嵩密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-1（表中のNo 5）に示す結果を得た。

#### 【0044】実施例6

実施例5における繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）に代えて、繊維径が $3\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）を用いた以外は、実施例5と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-2（表中のNo6）に示す結果を得た。

#### 【0045】

【表2】

表 - 2

実施例 No	6	7	8	9	10
炭素繊維：ピッチ系 $1\text{ }\mu\text{m}$		40		50	
炭素繊維：ピッチ系 $3\text{ }\mu\text{m}$	50		40		50
ポリエステル繊維	3	20	20		
フェノール樹脂	47	40	40	50	50
多孔質炭素板の厚み (mm)	3	1.5	1.5	0.19	0.2
嵩密度 ( $\text{g/cm}^3$ )	0.62	0.5	0.52	0.6	0.58
平均気孔径 ( $\mu\text{m}$ )	18	18	20	25	28
ガス透過率 ( $\text{ml, mm}^3/\text{cm}^2, \text{hr, mmHg}$ )	1600	3100	3200	2100	2300
厚み方向の熱伝導率 ( $\text{kcal/m}^2, \text{hr}, ^\circ\text{C}$ )	7.5	5	4.6	6.5	5.8
曲げ強度 ( $\text{kg/cm}^2$ )	230	180	130	220	250
多孔質板/セパレーター間 接触抵抗 ( $\Omega\text{cm}$ )	0.02	0.05	0.04	0.03	0.04

#### 【0046】実施例7

繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）40重量%（抄紙体としては、66.7重量%）と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール×3mm）20重量%（抄紙体としては、33.3重量%）とを含む抄紙体（嵩密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）40重量%を溶融させて成形シート（嵩密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-2（表中のNo

7）に示す結果を得た。

#### 【0047】実施例8

実施例7における繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）に代えて、繊維径が $3\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）を用いた以外は、実施例7と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-2（表中のNo8）に示す結果を得た。

【0048】実施例9（請求項2に係る発明の抄紙体の実施例）

繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）50重量%に、結合剤とし

ての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）50重量%を予め配合させた抄紙体（高密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を、実施例1と同様にして焼成および黒鉛化処理し、燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-2（表中のNo9）に示す結果を得た。

【0049】実施例10（請求項2に係る発明の抄紙体の実施例）

実施例9における繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）に代えて、繊維径が $3\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のピッチ系炭素繊維（大阪ガス株式会社製）を用いた以外は、実施例9と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-2（表中のNo10）に示す結果を得た。 \*

# \*【0050】比較例1

繊維径が $7\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のPAN系炭素繊維（東レ株式会社製）40重量%と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール $\times 3\text{ mm}$ ）5重量%とを含む抄紙体（高密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）55重量%を溶融させて成形シート（高密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-3（表中のNo1）に示す結果を得た。

【0051】

【表3】

表 - 3

実施例 No	1	2	3	4	5
炭素繊維：PAN系 $7\text{ }\mu\text{m}$	40	10	50	40	50
ポリエステル繊維	5	50	3	20	
フェノール樹脂	55	40	47	40	50
多孔質炭素板の厚み (mm)	0.2	0.25	3	1.5	0.19
高密度 ( $\text{g/cm}^3$ )	0.53	0.44	0.66	0.52	0.62
平均気孔径 ( $\mu\text{m}$ )	35	40	30	28	38
ガス透過率 ( $\text{ml, mm}^3/\text{cm}^2 \cdot \text{hr. mmHg}$ )	2300	3100	1500	3000	2400
厚み方向の熱伝導率 ( $\text{kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{hr. }^\circ\text{C}$ )	2.2	1.5	2.1	2.5	2.8
曲げ強度 ( $\text{kg/cm}^2$ )	130	90	160	120	180
多孔質板/セパレーター間 接触抵抗 ( $\Omega\text{cm}$ )	0.25	0.2	0.15	0.16	0.23

# 【0052】比較例2

繊維径が $7\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のPAN系炭素繊維（東レ株式会社製）10重量%と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール $\times 3\text{ mm}$ ）50重量%とを含む抄紙体（高密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）40重量%を溶融させて成形シート（高密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-3（表中のNo2）に示す結果を得た。

# 【0053】比較例3

繊維径が $7\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のPAN系炭素繊維（東レ株式会社製）50重量%と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール $\times 3\text{ mm}$ ）3重量%とを含む抄紙体（高密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）47重量%を溶融させて成形シ

ート（高密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-3（表中のNo3）に示す結果を得た。

# 【0054】比較例4

繊維径が $7\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のPAN系炭素繊維（東レ株式会社製）40重量%と、炭化収率が5重量%のポリエステル繊維（日本繊維株式会社製、0.5デニール $\times 3\text{ mm}$ ）20重量%とを含む抄紙体（高密度 $0.05\text{ g/cm}^3$ ）を $160^\circ\text{C}$ で加熱しながら加圧し、結合剤としての炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS890：鐘紡株式会社製）40重量%を溶融させて成形シート（高密度 $0.7\text{ g/cm}^3$ ）を得た。焼成および黒鉛化処理は、実施例1と同様にして燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-3（表中のNo4）に示す結果を得た。

# 【0055】比較例5

繊維径が $7\text{ }\mu\text{m}$ でペーパー目付が $50\text{ g/m}^2$ のPAN系炭素繊維（東レ株式会社製）50重量%に、結合剤としての

炭化収率が65重量%のフェノール樹脂（ベルパールS 890：鐘紡株式会社製）50重量%を予め配合させた抄紙体（嵩密度  $0.7 \text{ g/cm}^3$ ）を、実施例1と同様にして焼成および黒鉛化処理し、燃料電池用多孔質炭素板を製造した。得られた燃料電池用多孔質炭素板の特性を測定したところ、表-3（表中のNo5）に示す結果を得た。

【0056】上記結果から、次のことが明らかであった。①嵩密度は同様でありながら、実施例の燃料電池用多孔質炭素板の方が比較例に比べて平均気孔径を  $28 \mu\text{m}$  以下にコントロールでき、ガス透過性を向上できる。②強度を低下させることなく、実施例の燃料電池用多孔質炭素板の方が比較例に比べて熱伝導率を大幅に向上できるとともに、多孔質炭素板とセパレーター間の接触抵抗を大幅に低減できている。

【0057】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、請求項1および請求項2に係る発明の抄紙体によれば、ガス拡散電極板として製作したときに、同一炭素繊維含有率での繊維本数が増えて、その内部での炭素繊維どうしの接点数を増大できるから、内部の電気抵抗を低減でき

て電気伝導性を向上できる。また、平均気孔径を小さなものにコントロールできるから、ガス透過性を向上できる。しかも、同一炭素繊維含有率での繊維本数が多くなるから、強度を低下させることがなく、かつ、例えば、高分子型燃料電池における電極触媒担持用多孔質炭素板とセパレーターとか、リン酸型燃料電池のリン酸保持体としての多孔質炭素板とセパレーターとか、リン酸型燃料電池のリン酸保持体としての多孔質炭素板と電極触媒担持用多孔質炭素板といった他の部材との接触面積および接触機会を増大でき、それらの間の接触抵抗を低減できて熱損失を減少できる。

【0058】また、請求項3に係る発明の燃料電池用多孔質炭素板の製造方法によれば、請求項1に係る発明の抄紙体を用い、結合剤を均質に付着させ、燃料電池用多孔質炭素板内において炭素繊維を均一に分散させるから、ガス拡散電極板として製作したときに、ガス透過性、電気伝導性、機械強度および接触抵抗面のいずれにおいても優れた品質の多孔質炭素板を製造できるようになった。